# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number:

2002-322449

(43) Date of publication of application: 08.11.2002

(51)Int.CI.

C09J133/08 C09J 7/02 C09J 9/00 H05K

(21)Application number: 2001-126257

(71)Applicant: SEKISUI CHEM CO LTD

(22)Date of filing:

24.04.2001

(72)Inventor: SUGITA TAIHEI

### (54) HEAT CONDUCTIVE, PRESSURE SENSITIVE ADHESIVE

## (57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a heat conductive, pressure sensitive adhesive obtained by improving heat conductivity of a (meth)acrylic copolymer and stickiness to an adherent by improving the flexibility of the

SOLUTION: This heat conductive, pressure sensitive adhesive comprises 100 pts.wt. (meth)acrylic copolymer and 50-400 pts.wt. heat conductive particles, wherein the (meth)acrylic copolymer comprises 60-95 wt.% alkyl (meth)acrylate having a 2-12C alkyl group and 5-40 wt.% vinyl monomer satisfying the formula (I). ρ5/3(n/M)2/3 ≥0.29... formula (I) [wherein, p is the density (g/cm3) of the vinyl monomer; n is the chain number of the vinyl monomer; and M is the molecular weight of the vinyl monomer].

#### **LEGAL STATUS**

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

### (19)日本国特許庁(JP)

# (12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号 特開2002-322449 (P2002-322449A)

(43)公開日 平成14年11月8日(2002.11.8)

5E322 FA04 FA09

(51)Int.Cl. <sup>7</sup>		FΙ	テーマコード( <b>参考</b> )	
C 0 9 J 133/08		С 0 9 Ј 133/08	4 J 0 0 4	
7/02		7/02	Z 4J040	
9/00		9/00	5 E 3 2 2	
H05K 7/20		H 0 5 K 7/20	F	
		審查請求 未請求 請求項の	数1 OL (全 7 頁)	
(21)出願番号	特願2001-126257(P2001-126257)	(71)出頭人 000002174		
		稅水化学工業株式	会社	
(22)出顧日	平成13年4月24日(2001.4.24)	大阪府大阪市北区	西天満2丁目4番4号	
		(72)発明者 杉田 大平		
		京都市南区上鳥羽	上調子町2-2 積水化	
		学工業株式会社内		
		Fターム(参考) 4J004 AA10 A	BO1 CA06 CB03 CE02	
		FA05		
		4J040 DF021 HA026 HA066 HA076		
		HA136	HA156 HA206 HA296	
		НА306	HA326 JB09 KA01	
			A04 LA06 LA08 NA20	

### (54) 【発明の名称】 熱伝導性感圧接着剤

# (57)【要約】

【課題】 本発明は、(メタ)アクリル系共重合体自体の熱伝導性を向上させ、更に、被接着部材との接着性を向上させるとともに柔軟性を向上させて被接着部材との密着性を向上させた熱伝導性に優れた熱伝導性感圧接着剤を提供する。

【解決手段】 本発明の熱伝導性感圧接着剤は、炭素数が2~12のアルキル基を有するアルキル(メタ)アクリレート60~95重量%及び下記式(I)を満たすビニルモノマー5~40重量%からなる(メタ)アクリル系共重合体100重量部と熱伝導粒子50~400重量部とからなるので、この熱伝導性感圧接着剤からなるフィルムは、被接着部材に高い密着度で且つ広範囲な接着面積で接着し、バインダーである(メタ)アクリル系共重合体の優れた熱伝導性及び熱伝導粒子の熱伝導性とも相まって、被接着部材から発生した熱を例えば、放熱部材等に確実に伝播させることができる。

2

#### 【特許請求の範囲】

【請求項1】 炭素数が2~12のアルキル基を有するアルキル (メタ) アクリレート60~95重量%及び下記式 (I) を満たすビニルモノマー5~40重量%からなる (メタ) アクリル系共重合体100重量部に対して熱伝導粒子50~400重量部を配合してなることを特徴とする熱伝導性感圧接着剤。

 $\rho^{5/3}$  (n/M)  $^{2/3}$  ≥0. 29···式(1)

但し、 $\rho$ :23 $^{\circ}$ におけるビニルモノマーの密度(g/c m³)

n:ビニルモノマーの鎖員数

M:ビニルモノマーの分子量

【発明の詳細な説明】

[0001]

【発明の属する技術分野】本発明は、熱伝導性、接着性 及び柔軟性に優れた熱伝導性感圧接着剤に関する。

[0002]

【従来の技術】近年、パーソナルコンピューター等に用いられるCPUの高性能化に伴い、CPUから発生する発熱対策が問題となっている。このような発熱対策とし 20 ては、金属やセラミックス等からなる高い熱伝導性を有する熱伝導粒子を合成樹脂バインダー中に分散させてなる熱伝導シートが用いられ、具体的には、CPUと放熱部材とを熱伝導シートを介して一体化させ、CPUから発生した熱を熱伝導シートを通じて放熱部材に伝播させていた。

【0003】ここで、上記CPUから発生した熱の放散性は、上記熱伝導シートの熱伝導性、並びに、熱伝導シートとCPU及び放熱部材との間の密着性によって決定される。

【0004】そこで、上記熱伝導シートの熱伝導性を向上させるべく、熱伝導粒子の合成樹脂バインダー中における分散量を多くすることが考えられるが、熱伝導粒子を増量させると確かに熱伝導シート自体の熱伝導性は向上するものの、熱伝導シートの柔軟性が低下してCPUや放熱部材との間の密着性が低下してしまい、かえってCPUから発生した熱の放散性が低下しまうといった問題点があった。

【0005】又、上記熱伝導シートとCPU及び放熱部材との間の密着性を向上させるべく、特開平6-88061号公報には、アルキル基中に1~12個の炭素原子を有するアルキルアクリレート又はメタクリレート、及び、上記アルキルアクリレート又はメタクリレートと共重合可能な極性モノマーを含有するモノマーを重合させてなるポリマーと熱伝導電気絶縁粒子とからなる熱伝導電気絶縁感圧接着剤が提案されている。

【0006】確かに、上記熱伝導電気絶縁感圧接着剤からなるシートは、CPU及び放熱部材との密着性を改善しているものの、ポリマー自体の熱伝導性が低いことからCPUから発生した熱の放散性としては未だ不十分で 50

あった。

【0007】一方、合成樹脂の熱伝導率は、その分子構造の違いによって様々な値を採ることが知られている。 工業材料(1983年発行 第31巻第2号第109~ 113頁)では、合成樹脂の熱伝導率(λ)を表す近似式を下記の通り提案している。

【0008】熱伝導率  $(\lambda) = 1.23 \times 10^{-2} \text{ c } \rho$   $(n, \rho/2\text{Mw})^{2/3}$ 

但し c : 合成樹脂の比熱

10 ρ : 合成樹脂の密度

n、:高分子の繰り返し単位の鎖員数

Mw:分子の繰り返し単位の分子量

【0009】そして、本発明では、上記熱伝導率を表す式中の係数及び比熱以外の $\rho$  (n,  $\rho$ /2 Mw)  $^{2/3}$  項 に着目したところ、汎用のアクリル系樹脂を構成するモノマーであるn-ブチルアクリレートや2-エチルヘキシルアクリレートは、上記 $\rho$  (n,  $\rho$ /2 Mw)  $^{2/3}$  項の値が約0.25であって、これらモノマーだけからなるアクリル系樹脂では熱伝導性に劣ることが判明し、上記 $\rho$  (n,  $\rho$ /2 Mw)  $^{2/3}$  項が0.29以上であるモノマーを共重合させれば、熱伝導性に優れたアクリル系共重合体が得られることが分かった。

[0010]

【発明が解決しようとする課題】本発明は、バインダーとなる(メタ)アクリル系共重合体自体の熱伝導性に着目し、この(メタ)アクリル系共重合体自体の熱伝導性を向上させ、更に、CPUや放熱部材等の被接着部材との接着性を向上させるとともに柔軟性を向上させて被接着部材との密着性を向上させた熱伝導性に優れた熱伝導性感圧接着剤を提供する。

[0011]

30

【課題を解決するための手段】請求項1に記載の熱伝導性感圧接着剤は、炭素数が $2\sim1~2$ のアルキル基を有するアルキル(メタ)アクリレート $6~0\sim9~5$ 重量%及び下記式(I)を満たすビニルモノマー $5\sim4~0$ 重量%からなる(メタ)アクリル系共重合体1~0~0重量部に対して熱伝導粒子 $5~0\sim4~0~0$ 重量部を配合してなることを特徴とする。

 $\rho^{5/3}(n/M)^{2/3} \ge 0.29 \cdot \cdot \cdot \vec{x}(1)$ 

但し、ρ:23℃におけるビニルモノマーの密度(g / c m³)

n:ビニルモノマーの鎖員数

M:ビニルモノマーの分子量

[0012]

【作用】本発明の熱伝導性感圧接着剤は、炭素数が2~12のアルキル基を有するアルキル(メタ)アクリレート60~95重量%及び上記式(I)を満たすビニルモノマー5~40重量%からなる(メタ)アクリル系共重合体をバインダーとして用いていることから優れた熱伝導性を有している。

1

3

【0013】しかも、バインダーとなる上記(メタ)アクリル系共重合体は、優れた柔軟性を有しているとともに接着性に優れていることから、本発明の熱伝導性感圧接着剤からなるフィルム(シート)は、CPUや放熱部材といった被接着部材の被接着面に密着状態で良好に接着する。

【0014】従って、上記熱伝導性感圧接着剤からなるフィルムは、被接着部材に高い密着度で接着し、バインダーである(メタ)アクリル系共重合体の優れた熱伝導性及び熱伝導粒子の熱伝導性も相まって、被接着部材か 10 ら発生した熱を例えば、放熱部材等に伝播させることができる。

#### [0015]

【発明の実施の形態】本発明の熱伝導性感圧接着剤は、炭素数が  $2\sim1$  2のアルキル基を有するアルキル(メタ)アクリレート 6 0~9 5 重量%及び下記式(I)を満たすビニルモノマー  $5\sim4$  0 重量%からなる(メタ)アクリル系共重合体 1 0 0 重量部に対して熱伝導粒子 5 0~4 0 0 重量部を配合してなることを特徴とする。 $\rho^{5/3}$  (n/M)  $^{2/3}$   $\geq$  0. 2 9・・・式(I)但し、 $\rho$ : 2 3  $\mathbb C$ におけるビニルモノマーの密度(g/c  $m^3$ )

n:ビニルモノマーの鎖員数

M:ビニルモノマーの分子量

なお、上記ビニルモノマーの鎖員数とは、ビニルモノマー中における原子間の共有電子対の数をいう。

【0016】上記炭素数が2~12のアルキル基を有するアルキル(メタ)アクリレートとしては、例えば、エチル(メタ)アクリレート、nープチル(メタ)アクリレート、イソオクチル(メタ)アクリレート、nーオクチル(メタ)アクリレート、イソノニル(メタ)アクリレート、ラウリル(メタ)アクリレート、ラウリル(メタ)アクリレート、2ーエチルへキシル(メタ)アクリレートが好ましい。なお、上記炭素数が2~12のアルキル基を有するアルキル(メタ)アクリレートは単独で用いられても併用されてもよいが、併用する場合には、nープチル(メタ)アクリレートと2ーエチルへキシル(メタ)アクリレートとを併用することが好ましい。

【0017】又、上記炭素数が2~12のアルキル基を有するアルキル(メタ)アクリレートと共重合可能で且つ上記式(I)を満たすビニルモノマーとしては、例えば、メトキシポリエチレングリコール(メタ)アクリレート、フェノキシポリエチレングリコール(メタ)アクリレート、2-ヒドロキシー3-フェノキシプロピル(メタ)アクリレート等のエーテル結合含有側鎖を有する(メタ)アクリレート;アシッドホスフォキシドエチル(メタ)アクリレート等のリン酸基を有する(メタ)アクリレート;(メタ)アクリロニトリル、Nービニル50

ピロリドン、Nービニルカプロラクタム、アクリロイル モルホリン、(メタ)アクリルアミド、ジメチルアミノ エチル(メタ)アクリレート、ジエチルアミノ(メタ) アクリレート、ジメチルアミノプロピル(メタ)アクリ ルアミド、Nービニルアセトアミド等の窒素含有モノマ ー等が挙げられ、エーテル結合含有側鎖を有する(メ タ)アクリレート、リン酸基を有する(メタ)アクリレートが好ましい。

【0018】そして、上記式(I)を満たすビニルモノマーを用いることにより、得られる(メタ)アクリル系共重合体は熱伝導性に優れたものとなるが、下記式(II)を満たすビニルモノマーを用いれば、得られる(メタ)アクリル系共重合体は、より熱伝導性に優れたものとなり好ましい。

#### [0019]

い。

 $ho^{5/3}(n/M)^{2/3} \ge 0$ .  $30 \cdot \cdot \cdot \cdot$ 式(II) 但し、ho:23℃におけるビニルモノマーの密度( $g/cm^3$ )

n:ビニルモノマーの鎖員数

M:ビニルモノマーの分子量

【0020】又、上記(メタ)アクリル系共重合体中におけるビニルモノマーの含有量は、多いと、(メタ)アクリル系共重合体の凝集力が大きくなって柔軟性が低下し被接着部材との密着性が低下してしまうことがあり、又、少ないと、ビニルモノマーを上記アルキル(メタ)アクリレートに共重合させた効果が発現せず、熱伝導性感圧接着剤の熱伝導性が低下してしまうことがあるので、5~40重量%に限定され、10~30重量%が好ましい。

【0021】同様の理由で、上記(メタ)アクリル系共 重合体中における炭素数が2~12のアルキル基を有す るアルキル(メタ)アクリレートの含有量は、60~9 5重量%に限定され、70~90重量%が好ましい。 【0022】又、上記熱伝導粒子としては、アルミナ、 酸化マグネシウム、酸化ベリリウム、酸化チタン等の酸 化物類、窒化硼素、窒化理素、窒化アルミニウム等の窒 化物類、炭化珪素等の炭化物類;銅、銀、鉄、アルミニ ウム、ニッケル等の金属充填材;チタン等の金属合金充 填材;ダイヤモンド、カーボン等の炭素系充填材;石 英、石英ガラス等のシリカ粉類等が挙げられ、窒化硼 素、炭化珪素が好ましく、窒化硼素と炭化珪素とを併用 するのがより好ましい。又、上記熱伝導粒子の形態も、 特に限定されず、例えば、球状、針状、繊維状、鱗片 状、樹枝状、平板状の他、不定形状の何れであってもよ

【0023】上記熱伝導粒子の熱伝導率は、低いと、得られる熱伝導性感圧接着剤の熱伝導性が低下することがあるので、20W/(m・K)以上が好ましい。なお、熱伝導粒子の熱伝導率は、レーザーフラッシュ法に準拠して測定されたものをいう。

【0024】そして、上記熱伝導粒子が球状である場合には、その直径は、大きいと、熱伝導性感圧接着剤中に含まれる熱伝導粒子の個数が減少し、熱伝導粒子同士の接触面積が小さくなって得られる熱伝導性感圧接着剤の熱伝導性が低下することがあり、又、小さいと、熱伝導性感圧接着剤中に含まれる熱伝導粒子の個数が多くなり過ぎて熱伝導性感圧接着剤の柔軟性が低下し、被接着部材との密着性が低下して被接着部材から発生した熱を効率良く放散させることができないことがあるので、0.5~150μmが好ましく、1~100μmがより好ま 10しい。

【0025】又、上記熱伝導粒子が球状以外である場合には、そのアスペクト比は、大きいと、熱伝導性感圧接着剤中に含まれる熱伝導粒子の個数が減少し、熱伝導粒子同士の接触面積が小さくなって得られる熱伝導性感圧接着剤の熱伝導性が低下することがあり、又、小さいと、熱伝導性感圧接着剤中に含まれる熱伝導粒子の個数が多くなり過ぎて熱伝導性感圧接着剤の柔軟性が低下し、被接着部材との密着性が低下して被接着部材から発生した熱を効率良く放散させることができないことがあ20るので、3.5~5.5が好ましい。

【0026】なお、上記熱伝導粒子のアスペクト比とは、(熱伝導粒子の長径/熱伝導粒子の短径)をいい、複数個の任意の熱伝導粒子を光学顕微鏡、電子顕微鏡又はデジタル顕微鏡により観察し、各熱伝導粒子の長径及び短径を測定して(長径/短径)を算出し、それらの平均値をいうものとする。

【0027】更に、上記熱伝導粒子は、その外面全面にシラン処理等の表面処理を施して、(メタ)アクリル系 共重合体中における上記熱伝導粒子の分散性を向上させ 30 て熱伝導性感圧接着剤の熱伝導性の向上を図ってもよい。

【0028】そして、上記熱伝導粒子の熱伝導性感圧接着剤中における含有量は、多いと、得られる熱伝導性感圧接着剤の柔軟性が低下して被接着部材との密着性が低下し、被接着部材から発生した熱を効率良く放散させることができなくなり、又、少ないと、得られる熱伝導性感圧接着剤の熱伝導性が低下するので、50~400重量部に限定される。

【0029】又、上記熱伝導性感圧接着剤には、物性を 40 損なわない範囲内において、ロジン系樹脂、変性ロジン 系樹脂、テルペン系樹脂、テルペンフェノール系樹脂、 C5及びC9系石油樹脂、クマロン樹脂及びこれらの水 素添加物、可塑剤、軟化剤、無機充填剤、有機充填剤、 顔料、染料、難燃剤、酸化防止剤、紫外線吸収剤、香料 等の添加剤が添加されてもよい。

【0030】次に、上記熱伝導性感圧接着剤の製造方法について説明する。上記熱伝導性感圧接着剤の製造方法としては、例えば、上記炭素数が2~12のアルキル基を有するアルキル(メタ)アクリレートと上記式(1)

1,2002 3224

を満たすビニルモノマーとを汎用の重合方法を用いて共 重合させて(メタ)アクリル系共重合体を製造し、この (メタ)アクリル系共重合体中に熱伝導粒子を汎用の提 拌手段を用いて均一に分散させることにより上記熱伝導 性感圧接着剤を製造する方法が挙げられる。

【0031】上記炭素数が2~12のアルキル基を有する(メタ)アクリレートと上記式(1)を満たすビニルモノマーとを共重合させる重合方法としては、従来から汎用されている重合方法を用いることができ、例えば、溶剤中で重合する溶液重合法、紫外線、電子線等の電離性放射線を照射する光重合法等が挙げられ、溶液重合法が好ましい。

【0032】先ず、上記溶液重合法について説明する。上記(メタ)アクリル系共重合体を溶液重合法によって製造する要領としては、例えば、上記炭素数が2~12のアルキル基を有するアルキル(メタ)アクリレートと、上記式(I)を満たすビニルモノマーとをこれらを溶解可能な溶剤中に溶解させ、窒素等の不活性ガス雰囲気下において後述する熱重合開始剤を所定量づつ添加しつつ所定温度に加熱し、上記アルキル(メタ)アクリレートと上記ビニルモノマーとを共重合させることにより(メタ)アクリル系共重合体を得ることができる。

【0033】上記熱重合開始剤としては、従来から溶液 重合に用いられているものであれば、特に限定されず、 例えば、メチルエチルケトンパーオキサイド、シクロへ キサノンパーオキサイド等のケトンパーオキサイド類; イソブチリルパーオキサイド、ベンゾイルパーオキサイ ド、p-クロロベンゾイルパーオキサイド等のジアシル パーオキサイド類;ジイソプロピルベンゼンハイドロパ ーオキサイド、tーブチルハイドロパーオキサイド等の ハイドロパーオキサイド類;1,3-ビス-(t-ブチ ルパーオキシイソプロピル) ベンゼン等のジアルキルパ ーオキサイド類; 1, 1 - ジ(t - ブチルパーオキシ) -3.3.5-トリメチルシクロヘキサン等のパーオキ シケタール類;tーブチルパーオキシピバレート等のア ルキルパーエステル類; ジー2エチルヘキシルパーオキ シジカーボネート等のパーカーボネート類等の有機過酸 化物; 2, 2'ーアゾビスーイソブチロニトリル、2, 2'-アゾビス-2-メチルブチロニトリル等のアゾビ ス化合物等が挙げられる。

【0034】又、重合反応のばらつきを抑制し、得られる(メタ)アクリル系共重合体の重量平均分子量を適切 に調整して熱伝導性感圧接着剤の柔軟性及び接着性を向 上させるべく連鎖移動剤を添加してもよい。

【0035】このような連鎖移動剤としては、例えば、n ードデシルメルカプタン、2 ーメルカプトエタノール、 $\beta$  ーメルカプトプロピオン酸、チオグリコール酸プチル、チオホスファイト類等のチオール化合物や四塩化炭素等のハロゲン化合物等が挙げられる。

【0036】更に、上記(メタ)アクリル系共重合体の

凝集力を向上させ、熱伝導性感圧接着剤の接着性を向上 させることを目的として、 (メタ) アクリル系共重合体 を架橋させてもよい。

【0037】上記(メタ)アクリル系共重合体を架橋す るには、(メタ)アクリル系共重合体中の極性基と反応 可能な架橋剤を添加すればよい。このような架橋剤とし ては、例えば、イソシアネート系架橋剤、エポキシ系架 **橋剤等が挙げられる。** 

【0038】そして、上記架橋剤の添加量としては、多 いと、得られる(メタ)アクリル系共重合体の架橋密度 10 が高くなり過ぎ、熱伝導性感圧接着剤の柔軟性が低下し て被接着部材との密着性が低下し、被接着部材から発生 した熱を効率良く放散させることができなくなることが あり、又、少ないと、得られる熱伝導性感圧接着剤の凝 集力不足により接着性が低下して被接着部材がずれるこ とがあるので、(メタ)アクリル系共重合体100重量 部に対して0.01~5重量部が好ましく、0.1~3 重量部がより好ましい。

【0039】次に、光重合法について説明する。上記 (メタ) アクリル系共重合体を光重合法によって製造す 20 る要領としては、例えば、上記炭素数が2~12のアル キル基を有するアルキル (メタ) アクリレート、上記式 (1) を満たすビニルモノマー及び光重合開始剤を、混 練機、押出機、ミキサー、ロール、ニーダー、攪拌機等 の汎用の混合手段を用いて混合して光重合性組成物を 得、この光重合性組成物に光を照射することにより、上 記アルキル(メタ)アクリレートと上記ビニルモノマー とを共重合させることにより (メタ) アクリル系共重合 体を得ることができる。

【0040】上記光重合開始剤としては、従来から光重 30 合に汎用のものを用いることができ、例えば、4-(2 ーヒドロキシエトキシ)フェニル(2-ヒドロキシー2 ープロピル)ケトン、2ーヒドロキシー2ーメチルー1 ーフェニループロパンー1ーオン、メトキシアセトフェ ノン、2、2-ジメトキシー1、2-ジフェニルエタン -1-オン、1-ヒドロキシーシクロヘキシルフェニル ケトン等のアセトフェノン系光重合開始剤: ベンジルジ メチルケタール等のケタール系光重合開始剤;ハロゲン 化ケトン、アシルホスフィノキシド、アシルホスフォナ ート等が挙げられる。

【0041】そして、上記光重合開始剤の添加量として は、多いと、ラジカル発生量が多くなり(メタ)アクリ ル系共重合体の重量平均分子量が低下して接着性が低下 し、被接着部材から発生した熱を良好に放散させること ができないことがあり、又、少ないと、上記炭素数が2 ~12のアルキル基を有するアルキル(メタ)アクリレ ートと上記式(1)を満たすビニルモノマーとが十分に 重合しないことがあるので、上記炭素数が2~12のア ルキル基を有するアルキル(メタ)アクリレートと上記 式(1)を満たすビニルモノマーの総量100重量部に 50 対して0.01~10重量部が好ましく、0.05~5 重量部がより好ましい。

【0042】又、上記光重合に用いられる光源として は、光重合開始剤の種類にもよるが、波長420nm以 下に発光分布を有するものが好適に用いられ、このよう な光源としては例えば、低圧水銀灯、中圧水銀灯、高圧 水銀灯、超高圧水銀灯、ケミカルランプ、ブラックライ ト、マイクロウェーブ励起水銀灯、メタルハライドラン プ等挙げられ、光重合開始剤の活性波長領域の光を効率 良く発光するとともに光重合開始剤以外の成分における 光吸収が少なく光重合性組成物の内部にまで光が入射 し、比較的厚い熱伝導性感圧接着剤からなるフィルム (シート) を得ることができることから、ケミカルラン プが好ましい。

【0043】そして、得られた熱伝導性感圧接着剤はフ ィルム(シート)状に成形されて用いられるが、このフ ィルムの厚みは、厚いと、熱伝導性感圧接着剤からなる フィルム(シート)の熱伝導性が低下することがあり、 又、薄いと、被接着部材との間の密着性が低下し、被接 着部材から発生した熱を効率良く放散させることができ ないことがあるので、50~1000 μ mが好ましく、  $50\sim500\mu$  mがより好ましい。

[0044]

40

【実施例】(アクリル系共重合体溶液A)冷却管、温度 計及び攪拌器を備えたセパラブルフラスコに、炭素数が 2~12のアルキル基を有するアルキル(メタ)アクリ レートとして2-エチルヘキシルアクリレート600重 量部(式(1)における左辺の値:0.26)及びn-ブチルアクリレート300重量部(式(1)における左 辺の値: 0. 25) を、上記式(I) を満たすビニルモ ノマーとして 2 ーヒドロキシー 3 ーフェノキシプロピル アクリレート100重量部(式(1)における左辺の 値: 0. 33) を、連鎖移動開始剤としてn-ドデシル メルカプタン0.2重量部を酢酸エチル1000重量部 と共に仕込み、窒素ガス雰囲気下で還流が始まるまで昇 温した後、20分間そのまま保持し、熱重合開始剤であ るベンゾイルパーオキサイド1.0重量部を酢酸エチル 50重量部に溶解してなる熱重合開始剤溶液をセパラブ ルフラスコ内に滴下して4時間反応させた。

【0045】更に、ベンゾイルパーオキサイド1.0重 量部を酢酸エチル50重量部に溶解してなる熱重合開始 剤溶液を上記セパラブルフラスコ内に滴下して3時間反 応させた後、酢酸エチル500重量部を上記セパラブル フラスコ内に供給した上で反応溶液を攪拌混合し、アク リル系共重合体溶液 A (アクリル系共重合体成分:39 重量%、粘度:12000cps)を得た。

【0046】(アクリル系共重合体溶液B)冷却管、温 度計及び攪拌器を備えたセパラブルフラスコに、炭素数 が2~12のアルキル基を有するアルキル(メタ)アク リレートとして2-エチルヘキシルアクリレート600

重量部(式(1)における左辺の値:0.26)及びn -ブチルアクリレート300重量部(式(1)における 左辺の値: 0. 25) を、上記式(1) を満たすビニル モノマーとしてアシッドホスフォキシドエチルアクリレ ート100重量部(式(1)における左辺の値:0.3 6) を、連鎖移動開始剤としてnードデシルメルカプタ ン0.2重量部をエタノール1000重量部と共に仕込 み、窒素ガス雰囲気下で還流が始まるまで昇温した後、 20分間そのまま保持し、熱重合開始剤であるベンゾイ ルパーオキサイド1. 0重量部をエタノール50重量部 10 に溶解してなる熱重合開始剤溶液をセパラブルフラスコ 内に滴下して4時間反応させた。

【0047】更に、ベンゾイルパーオキサイド1.0重 量部をエタノール50重量部に溶解してなる熱重合開始 剤溶液を上記セパラブルフラスコ内に滴下して3時間反 応させた後、エタノール500重量部を上記セパラブル フラスコ内に供給した上で反応溶液を攪拌混合し、アク リル系共重合体溶液 B (アクリル系共重合体成分:3 9. 3重量%、粘度:13100cps)を得た。

【0048】(アクリル系共重合体溶液C)2-エチル 20 ヘキシルアクリレートを600重量部の代わりに300 重量部添加したこと、n-ブチルアクリレートを300 重量部の代わりに200重量部添加したこと、アシッド ホスフォキシドエチルアクリレート(式(1)における 左辺の値: 0.36)を100重量部の代わりに500 重量部添加したこと以外は、アクリル系共重合体Bと同 様にしてアクリル系共重合体溶液C(アクリル系共重合 体成分:39.1重量%、粘度11100cps)を得 た。

【0049】 (アクリル系共重合体溶液 D) n - ブチル 30 アクリレートを300重量部の代わりに380重量部添 加したこと、アシッドホスフォキシドエチルアクリレー ト(式(1)における左辺の値:0.36)を100重 量部の代わりに20重量部添加したこと以外は、アクリ ル系共重合体溶液Bと同様にしてアクリル系共重合体溶 液D(アクリル系共重合体成分:39.8重量%、粘 度:11900cps)を得た。

【0050】(実施例1)上記アクリル系共重合体溶液 A500重量部(アクリル系共重合体成分:195重量 部)に熱伝導粒子として窒化硼素(アスペクト比:9) 400重量部及び炭化珪素(球径:10μm)300重 量部を加えた後、アクリル系共重合体溶液A中に熱伝導\* \* 粒子が均一に分散するまでアクリル系共重合体溶液 A を 攪拌、混合した。

【0051】しかる後、上記アクリル系共重合体溶液A を一面が離型処理された厚み50 umのポリエチレンテ レフタレートフィルム上に塗工した後、オーブン中にお いて70℃で20分間乾燥することにより、厚さ100 μmの熱伝導性感圧接着剤からなるフィルムを得た。

【0052】 (実施例2) 上記アクリル系共重合体溶液 A500重量部の代わりに上記アクリル系共重合体溶液 B500重量部(アクリル系共重合体成分:196.5 重量部)を用いたこと以外は、実施例1と同様にして厚 さ100μmの熱伝導性感圧接着剤からなるフィルムを 得た。

【0053】(比較例1)上記アクリル系共重合体溶液 A500重量部の代わりに上記アクリル系共重合体溶液 C500重量部(アクリル系共重合体成分:195.5 **重量部)を用いたこと以外は、実施例1と同様にして厚** さ100μmの熱伝導性感圧接着剤からなるフィルムを 得た。

【0054】(比較例2)上記アクリル系共重合体溶液 A500重量部の代わりに上記アクリル系共重合体溶液 D500重量部(アクリル系共重合体成分:199重量 部)を用いたこと以外は、実施例1と同様にして厚さ1 00μmの熱伝導性感圧接着剤からなるフィルムを得 た。

【0055】(比較例3)熱伝導粒子として窒化硼素 (アスペクト比:9)を20重量部、炭化珪素(球径: 10 μm)を15重量部添加したこと以外は、実施例1 と同様にして厚さ100μmの熱伝導性感圧接着剤から なるフィルムを得た。

【0056】実施例1、2及び比較例1乃至3で得られ た熱伝導性感圧接着剤からなるフィルムの熱伝導率を測 定し、その結果を表1に示した。

【0057】(熱伝導率)得られた熱伝導性感圧接着剤 からなるフィルムを複数枚、これらフィルム間に空気層 が形成されないように厚み方向に密着させた状態に重ね 合わせて厚み300μmの試験片を作製した。しかる 後、上記試験片の熱伝導率を迅速熱伝導率計(京都電子 社製 商品名「KemthermQTM-D3」)を用 いて測定した。

[0058]

【表1】

	実施例1	実施例2	比較例1	比較例2	比較例3
熱伝導率	4. 95	5.01	1.95	4.05	0.98
W ∕ (m · K)					

# [0059]

【発明の効果】本発明の熱伝導性感圧接着剤は、炭素数 が2~12のアルキル基を有するアルキル(メタ)アク 50 系共重合体100重量部に対して熱伝導粒子50~40

リレート60~95重量%及び下記式(1)を満たすビ ニルモノマー5~40重量%からなる(メタ)アクリル 0 重量部を配合してなることを特徴とするので、バイン ダーとなる(メタ)アクリル系共重合体は、優れた熱伝 導性を有している。

11

【0060】しかも、上記(メタ)アクリル系共重合体は、優れた柔軟性を有しているとともに接着性に優れていることから、本発明の熱伝導性感圧接着剤からなるフィルム(シート)は、CPUや放熱部材といった被接着部材の被接着面に密着状態で被接着部材と良好に接着す\*

\*る。

【0061】従って、本発明の熱伝導性感圧接着剤からなるフィルム(シート)は、被接着部材に高い密着度で接着し、バインダーである(メタ)アクリル系共重合体の優れた熱伝導性及び熱伝導粒子の熱伝導性とも相まって、被接着部材から発生した熱を例えば、放熱部材等に確実に伝播させることができる。